(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 31. Januar 2002 (31.01.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 02/08197 A1

(51) Internationale Patentklassifikation7: C07D 231/44, 277/56, 207/34, 213/82, 309/30, 307/68, 333/38, 327/06, 263/34, C07C 251/48, 233/65, 211/45, 223/06, A01N 43/00

PCT/EP01/07981

(21) Internationales Aktenzeichen:(22) Internationales Anmeldedatum:

11. Juli 2001 (11.07.2001)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

51368 Leverkusen (DE).

100 35 857.8 101 22 447.8 24. Juli 2000 (24.07.2000) DE 9. Mai 2001 (09.05.2001) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): ELBE, Hans-Ludwig [DE/DE]; Dasnöckel 59, 42329 Wuppertal (DE). RIECK, Heiko [DE/DE]; Gudrunstrasse 4, 40764 Langenfeld (DE). DUNKEL, Ralf [DE/DE]; Krischerstrasse 22, 40789 Monheim (DE). WACHENDORFF-NEUMANN, Ulrike [DE/DE]; Oberer Markenweg 85, 56566 Neuwied (DE). MAULER-MACHNIK, Astrid [DE/DE]; Neuenkamper Weg 48, 42799 Leichlingen (DE). KUCK, Karl-Heinz [DE/DE]; Pastor-Löh-Strasse 30a, 40764

Langenfeld (DE). KUGLER, Martin [DE/DE]; Am Kloster 47, 42799 Leichlingen (DE). JAETSCH, Thomas [DE/DE]; Eintrachtstrasse 105, 50668 Köln (DE).

- (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; 51368 Leverkusen (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

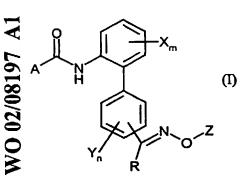
.Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- insgesamt in elektronischer Form (mit Ausnahme des Kopfbogens); auf Antrag vom Internationalen Büro erhältlich

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: BIPHENYL CARBOXAMIDES

(54) Bezeichnung: BIPHENYLCARBOXAMIDE



(57) Abstract: The invention relates to novel biphenyl carboxamides of formula (I), wherein A, R, Z, X, Y, m and n have the meanings given in the description, to multiple methods for producing these substances, to their use for combating unwanted micro-organisms and to novel intermediate products and the production thereof.

(57) Zusammenfassung: Neue Biphenylcarboxamide der Formel (I), in welcher A, R, Z, X, Y, m und n die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben, mehrere Verfahren zur Herstellung dieser Stoffe und deren Verwendung zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, sowie neue Zwischenprodukte und deren Herstellung.

Biphenylcarboxamide

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Biphenylcarboxamide, mehrere Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen.

Es ist bereits bekannt, dass zahlreiche Carboxanilide fungizide Eigenschaften besitzen (vergleiche WO 93/11 117, WO 99/09 013, WO 00/14 071, EP-A 0 545 099 und EP-A 0 589 301). Die Wirksamkeit dieser Stoffe ist gut, lässt aber in manchen Fällen zu wünschen übrig.

Es wurden nun neue Biphenylcarboxamide der Formel (I)

$$A = X_{m}$$

$$Y_{n} = X_{m}$$

$$R = X_{m}$$

$$(1),$$

15

5

10

in welcher

R für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl oder für C₁-C₆-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

- Z für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl oder für C₁-C₆-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,
- X und Y unabhängig voneinander für Halogen, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl,

 C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Alkoxy,

 C₁-C₆-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Alkylthio, C₁-C₆-

Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₂-C₈-Alkenyloxy, C₂-C₈-Halogenalkenyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₈-Alkinyloxy, C₃-C₈-Halogenalkinyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₈-Cycloalkyl, C₁-C₈-Alkoxycarbonyl, C₁-C₈-Alkylsulfinyl, C₁-C₈-Alkylsulfonyl, C₁-C₈-Halogenalkylsulfinyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Halogenalkylsulfonyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder C₁-C₆-Alkoximino-C₁-C₆-alkyl stehen,

m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,

n für ganze Zahlen von 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

und

15

10

5

A für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^1$$
 \mathbb{R}^2
 \mathbb{R}^3

steht, worin

- α) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C₁-C₄-alkyl steht und
- 25 R² für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkylthio steht und

R³ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C₁-C₄-alkyl, C₂-C₆-Alkenyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

oder

5

15

20

30

β) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C₂-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogen-10 alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C₁-C₄-alkyl steht und

R² für Fluor steht und

für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C₁-C₄-alkyl, C₂-C₆-Alkenyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

oder

25 γ) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogen-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C₁-C₄-alkyl steht und

R² für Fluor steht und

R³ für Wasserstoff, C₂-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C₁-C₄-alkyl, C₂-C₆-Alkenyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

oder

5

10 A für einen Rest der Formel

 R^4 und R^5 unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, C_1 - C_4 -Alkyl oder C_1 - C_4 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

R⁶ für Halogen, Cyano oder C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkoxy mit

1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

20

15

A für einen Rest der Formel

R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

-5-

R⁹ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder für Halogen steht,

oder

5 A für einen Rest der Formel

R¹⁰ für Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Cyano, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen oder für C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

10

20

25

15 A für einen Rest der Formel

R¹¹ für Halogen, Hydroxy, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, oder für C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R¹² für Wasserstoff, Halogen, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkylsulfinyl oder für C₁-C₄-Alkylsulfonyl steht,

oder

-6-

A für einen Rest der Formel

$$R^{14}$$
 R^{14} R^{13}

steht, worin

5 R¹³ für C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R¹⁴ für C₁-C₄-Alkyl steht,

X¹ für ein Schwefelatom, für SO, SO₂ oder CH₂ steht,

p für 0, 1 oder 2 steht,

oder

15

20

25

10

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R¹⁵ für C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

R¹⁶ für C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

5 oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

10 R¹⁷ für Halogen, Cyano, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

 R^{18} für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht.

R¹⁹ für Wasserstoff, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, Hydroxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, Di(C₁-C₄-alkyl)aminosulfonyl, C₁-C₆-Alkylcarbonyl oder für gegebenenfalls substituiertes Phenylsulfonyl oder

Benzoyl steht,

oder

15

20

25

A für einen Rest der Formel

 R^{20} und R^{21} unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Amino, C_1 - C_4 -Alkyl oder für C_1 - C_4 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

5

R²² für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

10

A für einen Rest der Formel

steht, worin

15

 R^{23} und R^{24} unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Amino, Nitro, C_1 - C_4 -Alkyl oder für C_1 - C_4 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

R²⁵ für

für Wasserstoff, Halogen, C_1 - C_4 -Alkyl oder für C_1 - C_4 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20

25

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R²⁶ für Wasserstoff, Halogen, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Cyano, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

5 R²⁷ für Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

10 A für einen Rest der Formel

R²⁸ für Wasserstoff, Halogen, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Cyano, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R²⁹ für Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20 oder

15

A für einen Rest der Formel

25 R³⁰ für Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

5

R³¹ für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl steht und

R³² für Halogen oder C₁-C₄-Alkyl steht,

10

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

15

R³³ für C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

20

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R³⁴ für Wasserstoff, Halogen oder für C₁-C₄-Alkyl steht,

25 gefunden.

Weiterhin wurde gefunden, dass man Biphenylcarboxamide der Formel (I) erhält, indem man

5 a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

in welcher

10 A die oben angegebenen Bedeutungen hat und

G für Halogen, Hydroxy oder C₁-C₆-Alkoxy steht,

mit Anilin-Derivaten der Formel (III)

15

$$H_2N$$
 $N O^Z$
(III)

in welcher

R, Z, X, Y, m und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

b) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

in welcher

5

15

A, X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben,

10 mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

$$G^1O_BOG^2$$

$$V_0 Z$$

$$V_0 Z$$

$$V_0 Z$$

$$V_0 Z$$

in welcher

R, Z, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben und

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

20 in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

c) Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)

$$A \xrightarrow{Q^1Q \xrightarrow{B} QG^2} X_m$$
 (VI)

5 in welcher

10

A, X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

G¹ und G² jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

in welcher

R, Z, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säure-20 bindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 14 -

d) Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII)

in welcher

5

A, R, X, Y, m und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Alkoxaminen der Formel (IX)

$$Z-O-NH_2 \times HCI$$
 (IX)

in welcher Z die oben angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

e) Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a)

20

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ &$$

in welcher

A, R, X, Y, m und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5

mit Verbindungen der Formel (X)

$$Z^{1} - E$$
 (X)

in welcher

10

- Z^1 für C_1 - C_6 -Alkyl steht und
- E für Chlor, Brom, Iod, Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl steht,
- 15 oder

 Z^1 und E zusammen für (Di-C₁-C₆-alkyl)sulfat stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

f) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

25

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 16 -

$$A \xrightarrow{\mathsf{D}} \mathsf{X}_{\mathsf{m}}$$
 (IV)

in welcher

A, X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

in welcher

10

R, Z, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

15

in Gegenwart eines Palladium- oder Platin-Katalysators und in Gegenwart von 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

20

25

Schließlich wurde gefunden, dass die neuen Biphenylcarboxamide der Formel (I) sehr gute mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar

sind.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen Biphenylcarboxamide der Formel (I) eine wesentlich bessere fungizide Wirksamkeit als die konstitutionell ähnlichsten, vorbekannten Wirkstoffe gleicher Wirkungsrichtung.

Die erfindungsgemäßen Biphenylcarboxamide sind durch die Formel (I) allgemein definiert.

- 5 R steht <u>bevorzugt</u> für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen.
 - Z steht <u>bevorzugt</u> für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen.

10

15

X und Y stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₂-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, C₂-C₆-Alkenyloxy, C₂-C₆-Halogenalkenyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₆-Alkinyloxy, C₃-C₆-Halogenalkinyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₇-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxycarbonyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₆-Halogenalkylsulfinyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₆-Halogenalkylsulfonyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder für C₁-C₄-Alkoximino-C₁-C₄-alkyl.

20

m steht <u>bevorzugt</u> für ganze Zahlen von 0 bis 3, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht.

25

- n steht <u>bevorzugt</u> für ganze Zahlen von 0 bis 4, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht.
- A steht bevorzugt für einen Rest der Formel

15

$$\mathbb{R}^{1}$$
 \mathbb{R}^{2}
, worin

α) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

R² für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio steht und

R³ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

oder

β) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Ethyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluor-methylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

R² für Fluor steht und

R³ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

5

oder

γ) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder
 Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

15 R² für Fluor steht und

R³ für Wasserstoff, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht.

20

25

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

R⁴ und R⁵ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor-und/oder Bromatomen stehen und

R⁶ für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht. A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^7$$
 \mathbb{R}^8 , worin

- 5 R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor-und/oder Bromatomen stehen und
 - R⁹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

10

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

15

25

R¹⁰ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder für C₁-C₂-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

20 A

steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{12}$$
 , woring

R¹¹ für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen,
 Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio,

15

Trifluormethylthio, oder für C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R¹² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, für C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₂-Alkylsulfinyl oder C₁-C₂-Alkylsulfonyl steht.

10 A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{14}$$
 , worth

R¹³ für Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R¹⁴ für Methyl oder Ethyl steht,

X¹ für ein Schwefelatom, für SO, SO₂ oder CH₂ steht und

20 p für 0, 1 oder 2 steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

25 R¹⁵ für Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

10

15

20

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

R¹⁶ für Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{17}$$
 R^{18}
 N
 R^{19}
, worin

R¹⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, Isopropyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

R¹⁸ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R¹⁹ Wasserstoff, Methyl, Ethyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₂-Alkoxy-C₁-C₂-alkyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Methylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

15

 R^{20} und R^{21} unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methyl, Ethyl oder für C_1 - C_2 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R²² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

10 A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{24}$$
 \mathbb{R}^{25} , worin

R²³ und R²⁴ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Nitro, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R²⁵ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

20 A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

- R²⁶ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Cyano, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und
- 5 R²⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.
 - A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

R²⁸ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Cyano, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

15

- R²⁹ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.
- A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

- R³⁰ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.
- A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{31}$$
 , worin

R³¹ für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

5 R³² für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

10 R³³ für Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor-und/oder Bromatomen steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

15 R³⁴ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

- R steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, C_1 - C_4 -Alkyl.
- 20 Z steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl.
 - X und Y stehen unabhängig voneinander <u>besonders bevorzugt</u> für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, i-Butyl, tert.-Butyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl,

m

n

Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Allyloxy, Propargyloxy, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methoximinomethyl, Ethoximinomethyl, Methoximinoethyl oder Ethoximinoethyl.

5

steht <u>besonders bevorzugt</u> für ganze Zahlen von 0 bis 3, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht.

10

steht besonders bevorzugt für die Zahlen 0 bis 4, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht.

A steht besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{1}$$
 \mathbb{N}
 \mathbb{R}^{2}
, worin

15

α) R¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl,
Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl,
Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy,
Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und

20

R² für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio steht und

25

R³ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

20

25

- β) R¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Ethyl, Isopropyl, Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und
 - R² für Fluor steht und
- 10 R³ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

- 15 γ) R¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl,
 Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl,
 Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy,
 Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und
 - R² für Fluor steht und
 - R³ für Wasserstoff, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

- R⁴ und R⁵ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und
- 5 R⁶ für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluorchlormethoxy oder Trichlormethoxy steht.
 - A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

- R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und
- 15 R⁹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.
 - A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

- R¹⁰ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trichlormethoxy, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio oder Trichlormethylthio steht.
- 25
- A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

WO 02/08197

5

25

$$R^{12}$$
 , worin

R¹¹ für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Trifluor-methyl, Difluormethyl, Difluormethyl, Trichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy oder Trichlormethoxy steht und

10 R¹² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl, Trichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylsulfinyl oder Methylsulfonyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{14}$$
 \xrightarrow{P} X^1 , woring

20 R¹³ für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht und

R¹⁴ für Methyl oder Ethyl steht,

X¹ für ein Schwefelatom, für SO, SO₂ oder CH₂ steht und

p für 0, 1 oder 2 steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

- 5 R¹⁵ für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.
 - A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

10

R¹⁶ für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

15

R¹⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, Isopropyl, Trifluor-methyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

- R¹⁸ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl,
 Difluormethyl oder Trichlormethyl steht und
- R¹⁹ Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Hydroxymethyl oder Hydroxyethyl steht.

20

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{21}$$
 \mathbb{R}^{20} , woring

R²⁰ und R²¹ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

R²² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

15 R²³ und R²⁴ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl stehen und

R²⁵ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

- R²⁶ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methylamino, Dimethylamino, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht und
- 5 R²⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht.
 - A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{28}$$
 \mathbb{R}^{29} , worin

R²⁸ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methylamino, Dimethylamino, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht und

15

- R²⁹ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.
- A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

- R³⁰ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.
- A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

20

R³¹ für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

5 R³² für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

10 R³³ für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

R³⁴ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

Bevorzugt oder besonders bevorzugt sind Verbindungen, welche die unter bevorzugt oder besonders bevorzugt genannten Substituenten tragen.

Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffreste wie Alkyl oder Alkenyl können, auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie z.B. in Alkoxy, soweit möglich, jeweils geradkettig oder verzweigt sein.

Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei Mehrfachsubstitutionen die Substituenten gleich oder verschieden sein können. Mehrere Reste mit denselben Indizes wie beispielsweise m Reste X für m >1, können gleich oder verschieden sein.

5

Durch Halogen substituierte Reste, wie z.B. Halogenalkyl, sind einfach oder mehrfach halogeniert. Bei mehrfacher Halogenierung können die Halogenatome gleich oder verschieden sein. Halogen steht dabei für Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere für Fluor, Chlor und Brom.

10

15

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restedefinitionen bzw. Erläuterungen können jedoch auch untereinander, also zwischen den jeweiligen Bereichen und Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden. Sie gelten für die Endprodukte sowie für die Vor- und Zwischenprodukte entsprechend. Außerdem können auch einzelne Definitionen entfallen.

Verwendet man 2-Methyl-4-trifluormethyl-1,3-thiazol-5-carbonsäurechlorid und 2-(4-Methoximinomethyl-phenyl)-anilin als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

20

25

Verwendet man 1,3-Dimethylpyrrol-4-carbonsäure-(2-brom)-anilid und 4-Methoximinoethyl-phenyl-boronsäure als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

5

Verwendet man 2-[(1,4-Dimethylpyrrol-3-yl)carbonylamino]phenyl-boronsäure und 1-Brom-4-methoximinoethyl-benzol als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

10

15

Verwendet man 1-Methyl-3-trifluormethylpyrazol-4-carbonsäure-[2-(4-acetyl-phenyl)-4-fluor]-anilid und Methoxaminhydrochlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

- 36 -

Verwendet man 1,3-Dimethylpyrazol-4-carbonsäure-[2-(4-hydroximinoethyl)-phenyl]-anilid und Methylbromid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

Verwendet man 5-Fluorthiazol-4-carbonsäure-(2-brom)-anilid und 1-Brom-4-methoximinomethyl-benzol als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator und 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (f) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

15

15

20

Erläuterung der Verfahren und Zwischenprodukte

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten Carbonsäure-Derivate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel steht A vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden. G steht bevorzugt für Chlor, Brom, Hydroxy, Methoxy oder Ethoxy, besonders bevorzugt für Chlor, Hydroxy oder Methoxy.

Die Carbonsäure-Derivate der Formel (II) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. WO 93/11 117, EP-A 0 545 099, EP-A 0 589 301 und EP-A 0 589 313).

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Reaktionskomponenten benötigten Anilin-Derivate sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel haben R, Z, X, Y, m und n vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden.

Die Anilin-Derivate der Formel (III) sind neu. Sie lassen sich teilweise nach bekannten Methoden herstellen (vgl. EP-A 0 545 099 und EP-A 0 589 301).

Man erhält Anilin-Derivate der Formel (III) außerdem, indem man

5 g) 2-Halogenanilin-Derivate der allgemeinen Formel (XI)

in welcher

10 X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

15

$$G^{1}O_{B}OG^{2}$$

$$V_{n} R V_{O} Z \qquad (V)$$

in welcher

R, Z, Y, n, G¹ und G² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt

oder

h) Anilinboronsäuren der Formel (XII)

5

in welcher

X, m, G¹ und G² die oben angegebenen Bedeutungen haben

10 mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

in welcher

15

R, Z, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

20

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) als Reaktionskomponenten benötigten 2-Halogenanilin-Derivate sind durch die Formel (XI) allgemein definiert. In dieser Formel haben X und m vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden. Hal steht vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, besonders bevorzugt für Chlor oder Brom.

5

10

15

20

Die 2-Halogenanilin-Derivate der Formel (XI) sind kommerziell erhältlich oder lassen sich aus den entsprechenden Nitroverbindungen durch Reduktion herstellen.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) als Reaktionskomponenten benötigten Anilinboronsäuren sind durch die Formel (XII) allgemein definiert. In dieser Formel haben X und m vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden. G¹ und G² stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Anilinboronsäuren der Formel (XII) sind kommerziell erhältlich.

Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (f) als Ausgangsstoffe benötigten Carboxamid-Derivate sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel stehen A, X und m vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

25

30

Die Carboxamid-Derivate der Formel (IV) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. WO 91/01311, EP-A 0 371 950).

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) sowie des Verfahrens (g) zur Herstellung der Reaktionskomponenten benötigten Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel haben R, Z, Y und n

vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden. G¹ und G² stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

5

Die Boronsäure-Derivate der Formel (V) sind neu und lassen sich herstellen, indem man

i) Phenylboronsäuren der Formel (XIII)

10

$$G^{1}O$$
 $G^{2}O$
 Y_{n}
 $(XIIII)$

in welcher

R, Y, n, G¹ und G² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

15

mit Alkoxaminen der Formel (IX)

$$Z-O-NH_2 \times HCI$$
 (IX)

20

in welcher

Z die oben angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (i) als Reaktionskomponenten benötigten Phenylboronsäuren sind durch die Formel (XIII) allgemein definiert. In dieser Formel haben R, Y und n vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden. G¹ und G² stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Phenylboronsäuren der Formel (XIII) sind kommerziell erhältlich.

10

15

20

5

Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (c) als Reaktionskomponenten benötigten Carboxamid-Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel stehen A, X und m, vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden. G¹ und G² stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

j) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



25 in welcher

A und G die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Anilinboronsäuren der Formel (XII)

- 43 -

in welcher

X, m, G¹ und G² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (c) und (f) sowie des Verfahrens (h) als Reaktionskomponenten benötigten Phenyloxim-Derivate sind durch die Formel (VII) allgemein definiert. In dieser Formel stehen R, Z, Y und n vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

Die Phenyloxim-Derivate der Formel (VII) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. Synth. Commun. 2000, 30, 665-669, Synth. Commun. 1999, 29, 1697-1701).

20

25

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) als Ausgangsstoffe benötigten Biphenylacyl-Derivate sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In dieser Formel stehen A, R, X, Y, m und n für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

Die Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

k) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

5 in welcher

A und G die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel (XIV)

10

in welcher

R, X, Y, m und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

15

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umsetzt.

20 p

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (k) als Reaktionskomponenten benötigten 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate sind durch die Formel (XIV) allgemein definiert. In dieser Formel stehen R, X, Y, m und n vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

Die 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate der Formel (XIV) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

5 l) Anilin-Derivate der Formel (XI)

in welcher

10 X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

mit Phenylboronsäure-Derivaten der Formel (XIII)

15

$$G^{1}O$$
 $G^{2}O$
 $(XIII)$

in welcher

R, Y, n, G¹ und G² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umsetzt.

- 46 -

Die bei der Durchführung des Verfahrens (l) als Reaktionskomponenten benötigten Anilin-Derivate der Formel (XI) wurden bereits bei der Beschreibung des Verfahrens (g) beschrieben.

Die bei der Durchführung des Verfahrens (1) als Reaktionskomponenten benötigten Phenylboronsäure-Derivate der Formel (XIII) wurden bereits bei der Beschreibung des Verfahrens (i) beschrieben.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) sowie des Verfahrens (i) als Reaktionskomponenten benötigten Alkoxamine sind durch die Formel (IX) allgemein definiert. In dieser Formel hat Z vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diesen Rest genannt wurden. Bevorzugt werden die in der Beschreibung angegebenen Hydrochloride eingesetzt. Es können aber auch die freien Alkoxamine in dem erfindungsgemäßen Verfahren verwendet werden.

Die Alkoxamine der Formel (IX) sind kommerziell erhältlich.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Ausgangsstoffe benötigten Hydroxylamin-Derivate sind durch die Formel (I-a) allgemein definiert. In dieser Formel steht A, R, X, Y, m und n vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

Die erfindungsgemäßen Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a) lassen sich nach einem der oben beschriebenen erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d) oder (f) herstellen.

10

15

WO 02/08197

5

10

15

20

25

30

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Reaktionskomponenten benötigten Verbindungen sind durch die Formel (X) allgemein definiert. In dieser Formel steht Z¹ bevorzugt für C₁-C₄-Alkyl, besonders bevorzugt für Methyl oder Ethyl. E steht bevorzugt für Chlor, Brom, Iod, Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl. E steht besonders bevorzugt für Chlor oder Brom.

Die Verbindungen der Formel (X) sind kommerziell erhältlich.

Als Säurebindemittel kommen bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils alle für derartige Reaktionen üblichen anorganischen und organischen Basen in Betracht. Vorzugsweise verwendbar sind Erdalkali- oder Alkalimetallhydroxide, wie Natriumhydroxid, Calciumhydroxid, Kaliumhydroxid, oder auch Ammoniumhydroxid, Alkalimetallcarbonate, wie Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat, Alkali- oder Erdalkalimetallacetate wie Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU). Es ist jedoch auch möglich, ohne zusätzliches Säurebindemittel zu arbeiten, oder die Aminkomponente in einem Überschuss einzusetzen, so dass sie gleichzeitig als Säurebindemittel fungiert.

Als Verdünnungsmittel kommen bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils alle üblichen inerten, organischen Solventien in Frage. Vorzugsweise verwendbar sind gegebenenfalls halogenierte aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder i-Butyronitril oder

Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid oder Sulfone, wie Sulfolan.

5

WO 02/08197

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 140°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C.

10

Bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) arbeitet man im allgemeinen jeweils unter Atmosphärendruck. Es ist aber auch möglich, jeweils unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

15

20

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) setzt man auf 1 Mol an Säurehalogenid der Formel (II) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Anilin-Derivat der Formel (III) sowie 1 bis 3 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, die organische Phase abtrennt und nach dem Trocknen unter vermindertem Druck einengt. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

25

30

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) setzt man auf 1 Mol an Carboxamid der Formel (IV) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Boronsäure-Derivat der Formel (V) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Nieder-

schlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) setzt man auf 1 Mol an Carboxamid-Boronsäure-Derivat der Formel (VI) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Phenyloxim-Derivat der Formel (VII) sowie 1 bis 10 Mol an Säurebindemittel und 0.5 bis 5 Molprozent eines Katalysators ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

15

20

10

5

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) setzt man auf 1 Mol an Biphenylacyl-Derivat der Formel (VIII) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Alkoxamin der Formel (IX) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt, mit Wasser und Diisopropylether wäscht und anschließend trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

25

30

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) setzt man auf 1 Mol an Hydroxylamin-Derivat der Formel (I-a) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Reagenz der Formel (X) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt

man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

5

10

15

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (f) setzt man auf 1 Mol an Carboxamid-Derivat der Formel (IV) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Phenyloxim-Derivat der Formel (VII) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein, sowie 1 bis 5 Mol eines Katalysators. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

20

30

- Fungizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.
- Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae einsetzen.
 - Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise Xanthomonas campestris pv. oryzae; Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise Pseudomonas syringae pv. lachrymans; Erwinia-Arten, wie beispielsweise Erwinia amylovora;

- Pythium-Arten, wie beispielsweise Pythium ultimum;
 Phytophthora-Arten, wie beispielsweise Phytophthora infestans;
 Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise Pseudoperonospora humuli oder
 Pseudoperonospora cubensis;
 - Plasmopara-Arten, wie beispielsweise Plasmopara viticola;
- Bremia-Arten, wie beispielsweise Bremia lactucae;
 Peronospora-Arten, wie beispielsweise Peronospora pisi oder P. brassicae;
 Erysiphe-Arten, wie beispielsweise Erysiphe graminis;
 Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise Sphaerotheca fuliginea;
 Podosphaera-Arten, wie beispielsweise Podosphaera leucotricha;
- Venturia-Arten, wie beispielsweise Venturia inaequalis;

 Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise Pyrenophora teres oder P. graminea (Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

 Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise Cochliobolus sativus (Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);
- Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces appendiculatus;
 Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita;
 Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise Sclerotinia sclerotiorum;
 Tilletia-Arten, wie beispielsweise Tilletia caries;
 Ustilago-Arten, wie beispielsweise Ustilago nuda oder Ustilago avenae;
- Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia sasakii;
 Pyricularia-Arten, wie beispielsweise Pyricularia oryzae;
 Fusarium-Arten, wie beispielsweise Fusarium culmorum;
 Botrytis-Arten, wie beispielsweise Botrytis cinerea;
 Septoria-Arten, wie beispielsweise Septoria nodorum;
- 30 Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise Leptosphaeria nodorum; Cercospora-Arten, wie beispielsweise Cercospora canescens;

5

10

15

20

25

30

Alternaria-Arten, wie beispielsweise Alternaria brassicae; Pseudocercosporella-Arten, wie beispielsweise Pseudocercosporella herpotrichoides.

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Krankheiten im Wein-, Obst- und Gemüseanbau einsetzen, wie beispielsweise gegen Venturia-, Botrytis-, Sclerotinia-, Rhizoctonia-, Uncinula-, Sphaerotheca-, Podosphaera-, Alternaria- und Colletotrichum-Arten. Mit gutem Erfolg werden auch Reiskrankheiten, wie Pyricularia- und Pellicularia-Arten, bekämpft.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Steigerung des Ernteertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.

Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützbaren oder nicht schützbaren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stengel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

20

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

5 Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und 10 Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikroorganismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien auch Teile von Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung seien als technische Mate-15 rialien vorzugsweise Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungsflüssigkeiten genannt, besonders bevorzugt Holz.

Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vorzugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze, holzverfärbende und holzzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und Algen.

Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:
Alternaria, wie Alternaria tenuis,
Aspergillus, wie Aspergillus niger,
Chaetomium, wie Chaetomium globosum,
Coniophora, wie Coniophora puetana,

Lentinus, wie Lentinus tigrinus,

Penicillium, wie Penicillium glaucum.

- 54 -

Polyporus, wie Polyporus versicolor,
Aureobasidium, wie Aureobasidium pullulans,
Sclerophoma, wie Sclerophoma pityophila,
Trichoderma, wie Trichoderma viride,

Escherichia, wie Escherichia coli,
Pseudomonas, wie Pseudomonas aeruginosa,
Staphylococcus, wie Staphylococcus aureus.

10

15

20

25

30

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen in

WO 02/08197

5

10

15

30

- 55 -

PCT/EP01/07981

Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylarylpolyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

- Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.
- Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei

synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen in Frage:

5

10

Fungizide:

Aldimorph, Ampropylfos, Ampropylfos-Kalium, Andoprim, Anilazin, Azaconazol, Azoxystrobin,

Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Benzamacril, Benzamacryl-isobutyl, Bialaphos, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticidin-S, Bromuconazol, Bupirimat, Buthiobat,

Calciumpolysulfid, Capsimycin, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, Carvon, Chinomethionat (Quinomethionat), Chlobenthiazon, Chlorfenazol, Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinat, Clozylacon, Cufraneb, Cymoxanil,

15 Cyproconazol, Cyprodinil, Cyprofuram,

Debacarb, Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran, Diethofencarb, Difenoconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol, Diniconazol-M, Dinocap, Diphenylamin, Dipyrithione, Ditalimfos, Dithianon, Dodemorph, Dodine, Drazoxolon,

20 Ediphenphos, Epoxiconazol, Etaconazol, Ethirimol, Etridiazol,

Famoxadon, Fenapanil, Fenarimol, Fenbuconazol, Fenfuram, Fenitropan, Fenpiclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetat, Fentinhydroxyd, Ferbam, Ferimzon, Fluazinam, Flumetover, Fluoromid, Fluquinconazol, Flurprimidol, Flusilazol, Flusulfamid, Flutolanil, Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Alminium, Fosetyl-

Natrium, Fthalid, Fuberidazol, Furalaxyl, Furametpyr, Furcarbonil, Furconazol, Furconazol-cis, Furmecyclox,

Guazatin,

30

Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol,

Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iminoctadinealbesilat, Iminoctadinetriacetat, Iodocarb, Ipconazol, Iprobenfos (IBP), Iprodione, Irumamycin, Isoprothiolan, Isovaledione,

Kasugamycin, Kresoxim-methyl, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfernaphthenat, Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-Mischung.

Mancopper, Mancozeb, Maneb, Meferimzone, Mepanipyrim, Mepronil, Metalaxyl,

- Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metomeclam, Metsulfovax, Mildiomycin, Myclobutanil, Myclozolin,
 - Nickel-dimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol,
 - Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxolinicacid, Oxycarboxim, Oxyfenthiin,
 - Paclobutrazol, Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Pimaricin,
- Piperalin, Polyoxin, Polyoxorim, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propanosine-Natrium, Propiconazol, Propineb, Pyrazophos, Pyrifenox, Pyrimethanil, Pyroquilon, Pyroxyfur,
 - Quinconazol, Quintozen (PCNB), Quinoxyfen,
 - Schwefel und Schwefel-Zubereitungen,
- Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetcyclacis, Tetraconazol, Thiabendazol, Thicyofen, Thifluzamide, Thiophanate-methyl, Thiram, Tioxymid, Tolclofos-methyl, Tolylfluanid, Triadimefon, Triadimenol, Triazbutil, Triazoxid, Trichlamid, Tricyclazol, Tridemorph, Triflumizol, Triforin, Triticonazol, Uniconazol,
- Validamycin A, Vinclozolin, Viniconazol, Zarilamid, Zineb, Ziram sowie Dagger G, OK-8705,

OK-8801,

- 25 α-(1,1-Dimethylethyl)-β-(2-phenoxyethyl)-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
 α-(2,4-Dichlorphenyl)-β-fluor-β-propyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
 α-(2,4-Dichlorphenyl)-β-methoxy-α-methyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
 α-(5-Methyl-1,3-dioxan-5-yl)-β-[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methylen]-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol.
- (5RS,6RS)-6-Hydroxy-2,2,7,7-tetramethyl-5-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-3-octanon,
 (E)-α-(Methoxyimino)-N-methyl-2-phenoxy-phenylacetamid,

 $\label{lem:carbonyl} \end{carbonyl-propyl-propyl-carbonyl-propyl-propyl-carbonyl-propyl-propyl-carbonyl-propyl$

- 1-isopropylester,
- 1-(2,4-Dichlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-ethanon-O-(phenylmethyl)-oxim,
- 1-(2-Methyl-1-naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion,
- 5 1-(3,5-Dichlorphenyl)-3-(2-propenyl)-2,5-pyrrolidindion,
 - 1-[(Diiodmethyl)-sulfonyl]-4-methyl-benzol,
 - 1-[[2-(2,4-Dichlorphenyl)-1,3-dioxolan-2-yl]-methyl]-1H-imidazol,
 - 1-[[2-(4-Chlorphenyl)-3-phenyloxiranyl]-methyl]-1H-1,2,4-triazol,
 - 1-[1-[2-[(2,4-Dichlorphenyl)-methoxy]-phenyl]-ethenyl]-1H-imidazol,
- 10 1-Methyl-5-nonyl-2-(phenylmethyl)-3-pyrrolidinol,
 - 2',6'-Dibrom-2-methyl-4'-trifluormethoxy-4'-trifluor-methyl-1,3-thiazol-5-carboxanilid,
 - 2,2-Dichlor-N-[1-(4-chlorphenyl)-ethyl]-1-ethyl-3-methyl-cyclopropancarboxamid,
 - 2,6-Dichlor-5-(methylthio)-4-pyrimidinyl-thiocyanat,
- 15 2,6-Dichlor-N-(4-trifluormethylbenzyl)-benzamid,
 - 2,6-Dichlor-N-[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methyl]-benzamid,
 - 2-(2,3,3-Triiod-2-propenyl)-2H-tetrazol,
 - 2-[(1-Methylethyl)-sulfonyl]-5-(trichlormethyl)-1,3,4-thiadiazol,
 - 2-[[6-Deoxy-4-O-(4-O-methyl-B-D-glycopyranosyl)-a-D-glucopyranosyl]-amino]-4-
- 20 methoxy-1H-pyrrolo[2,3-d]pyrimidin-5-carbonitril,
 - 2-Aminobutan,
 - 2-Brom-2-(brommethyl)-pentandinitril,
 - 2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamid,
 - 2-Chlor-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(isothiocyanatomethyl)-acetamid,
- 25 2-Phenylphenol(OPP),
 - 3,4-Dichlor-1-[4-(difluormethoxy)-phenyl]-1H-pyrrol-2,5-dion,
 - 3,5-Dichlor-N-[cyan[(1-methyl-2-propynyl)-oxy]-methyl]-benzamid,
 - 3-(1,1-Dimethylpropyl-1-oxo-1H-inden-2-carbonitril,
 - 3-[2-(4-Chlorphenyl)-5-ethoxy-3-isoxazolidinyl]-pyridin,
- 30 4-Chlor-2-cyan-N,N-dimethyl-5-(4-methylphenyl)-1H-imidazol-1-sulfonamid,
 - 4-Methyl-tetrazolo[1,5-a]quinazolin-5(4H)-on,

- 8-(1,1-Dimethylethyl)-N-ethyl-N-propyl-1,4-dioxaspiro[4.5]decan-2-methanamin, 8-Hydroxychinolinsulfat,
- 9H-Xanthen-9-carbonsäure-2-[(phenylamino)-carbonyl]-hydrazid,
- bis-(1-Methylethyl)-3-methyl-4-[(3-methylbenzoyl)-oxy]-2,5-thiophendicarboxylat,
- 5 cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol, cis-4-[3-[4-(1,1-Dimethylpropyl)-phenyl-2-methylpropyl]-2,6-dimethyl-morpholin-hydrochlorid.
 - Ethyl-[(4-chlorphenyl)-azo]-cyanoacetat,
 - Kaliumhydrogencarbonat,
- 10 Methantetrathiol-Natriumsalz,
 - Methyl-1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat,
 - Methyl-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(5-isoxazolylcarbonyl)-DL-alaninat,
 - Methyl-N-(chloracetyl)-N-(2,6-dimethylphenyl)-DL-alaninat,
 - N-(2,3-Dichlor-4-hydroxyphenyl)-1-methyl-cyclohexancarboxamid.
- 15 N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-furanyl)-acetamid,
 - N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-thienyl)-acetamid,
 - N-(2-Chlor-4-nitrophenyl)-4-methyl-3-nitro-benzolsulfonamid,
 - N-(4-Cyclohexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,
 - N-(4-Hexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,
- N-(5-Chlor-2-methylphenyl)-2-methoxy-N-(2-oxo-3-oxazolidinyl)-acetamid,
 - N-(6-Methoxy)-3-pyridinyl)-cyclopropancarboxamid,
 - N-[2,2,2-Trichlor-1-[(chloracetyl)-amino]-ethyl]-benzamid,
 - N-[3-Chlor-4,5-bis-(2-propinyloxy)-phenyl]-N'-methoxy-methanimidamid,
 - N-Formyl-N-hydroxy-DL-alanin-Natriumsalz.
- 25 O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat,
 - O-Methyl-S-phenyl-phenylpropylphosphoramidothioate,
 - S-Methyl-1,2,3-benzothiadiazol-7-carbothioat,
 - spiro[2H]-1-Benzopyran-2,1'(3'H)-isobenzofuran]-3'-on,

Bakterizide:

Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Octhilinon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

5

Insektizide / Akarizide / Nematizide:

Abamectin, Acephat, Acetamiprid, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb, Alpha-cypermethrin, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin, Azamethiphos, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin,

- Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis, Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Benzoximate, Betacyfluthrin, Bifenazate, Bifenthrin, Bioethanomethrin, Biopermethrin, BPMC, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocarboxim, Butylpyridaben,
- Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Chlovaphorthrin, Cis-Resmethrin, Cispermethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Cyanophos, Cycloprene, Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazin,
- Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthiuron, Diazinon, Dichlorvos, Diflubenzuron, Dimethoat, Dimethylvinphos, Diofenolan, Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn,
 - Elfusilanate, Emamectin, Empenthrin, Endosulfan, Entomopfthora spp., Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimphos,
- Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatinoxide, Fenitrothion, Fenothiocarb, Fenoxacrim, Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fenvalerate, Fipronil, Fluazinam, Fluazuron, Flubrocythrinate, Flucycloxuron, Flucythrinate, Flufenoxuron, Flutenzine, Fluvalinate, Fonophos, Fosmethilan, Fosthiazate, Fubfenprox, Furathiocarb,
- Granuloseviren,
 Halofenozide, HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydroprene,

Imidacloprid, Isazophos, Isofenphos, Isoxathion, Ivermectin,

Kernpolyederviren,

Lamda-cyhalothrin, Lufenuron,

Malathion, Mecarbam, Metaldehyd, Methamidophos, Metharhizium anisopliae,

Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoxyfenozide, Metolcarb, Metoxadiazone, Mevinphos, Milbemectin, Monocrotophos,

Naled, Nitenpyram, Nithiazine, Novaluron,

Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M,

Paecilomyces fumosoroseus, Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat,

Phorat, Phosalon, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos A, Pirimiphos M, Profenophos, Promecarb, Propoxur, Prothiophos, Prothoat, Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridathion, Pyrimidifen, Pyriproxifen,

Quinalphos,

15 Ribavirin,

20

Salithion, Sebufos, Silafluofen, Spinosad, Sulfotep, Sulprofos,

Tau-fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimiphos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos, Temivinphos, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Thetacypermethrin, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thuringiensin, Tralocythrin, Tralomethrin, Triarathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb,

Vamidothion, Vaniliprole, Verticillium lecanii

YI 5302

25 Zeta-Cypermethrin, Zolaprofos

(1R-cis)-[5-(Phenylmethyl)-3-furanyl]-methyl-3-[(dihydro-2-oxo-3(2H)-furanyliden)-methyl]-2,2-dimethylcyclopropancarboxylat,

(3-Phenoxyphenyl)-methyl-2,2,3,3-tetramethylcyclopropanecarboxylat,

30 1-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]tetrahydro-3,5-dimethyl-N-nitro-1,3,5-triazin-2(1H)-imin,

- 2-(2-Chlor-6-fluorphenyl)-4-[4-(1,1-diemthylethyl)phenyl]-4,5-dihydro-oxazol,
- 2-(Acetlyoxy)-3-docecyl-1,4-naphthalinidion,
- 2-Chlor-N-[[[4-(1-phenylethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid,
- 2-Chlor-N-[[[4-(2,2-dichlor-1,1-difluorethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid,
- 5 3-Methylphenyl-propylcarbamat,
 - 4-[4-(4-Ethoxyphenyl)-4-methylpentyl]-1-fluor-2-phenoxy-benzol,
 - 4-Chlor-2-(1,1-dimethylethyl)-5-[[2-(2,6-dimethyl-4-phenoxyphenoxy)ethyl]thio]-3(2H)-pyridazinon,
 - 4-Chlor-2-(2-chlor-2-methylpropyl)-5-[(6-iod-3-pyridinyl)methoxy]-3(2H)-
- 10 pyridazinon,
 - 4-Chlor-5[(6-chlor-3-pyridinyl)methoxy]-2-(3,4-dichlorphenyl)-3(2H)-pyridazinon, Bacillus thuringiensis strain EG-2348,
 - Benzoesäure (2-benzoyl-1-(1,1-dimethylethyl)-hydrazid,
 - Butan 2,2-dimethyl-3-(2,4-dichlorphenyl)-2-oxo-1-oxaspiro[4.5]dec-3-en-4-yl-ester,
- 15 [3-[(6-Chlor-3-pyridinyl)methyl]-2-thiazolidinyliden]-cyanamid,
 - Dihydro-2-(nitromethylen)-2H-1,3-thiazine-3(4H)-carboxaldehyd,
 - Ethyl-[2-[[1,6-dihydro-6-oxo-1-(phenylmethyl)-4-pyridazinyl]oxy]ethyl]-carbamat,
 - N-(3.4.4-Trifluor-1-oxo-3-butenyl)-glycin,
 - N-(4-Chlorphenyl)-3-[4-Difluormethoxy)phenyl]-4,5-dihydro-4-phenyl-1H-pyrazol-
- 20 1-carboxamid,
 - N-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]-N'-methyl-N"-nitro-guanidin,
 - N-Methyl-N'-(1-methyl-2-propenyl)-1,2-hydrazindicarbothioamid,
 - N-Methyl-N'-2-propenyl-1,2-hydrazindicarbothioamid,
 - O.O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat.

25

30

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites antimy-

- 63 -

kotisches Wirkungsspektrum, insbesondere gegen Dermatophyten und Sproßpilze, Schimmel und diphasische Pilze,

z.B. gegen Candida-Spezies wie Candida albicans, Candida glabrata, Epidermophyton-Spezies wie Epidermophyton floccosum, Aspergillus-Spezies wie Aspergillus niger und Aspergillus fumigatus, Trichophyton-Spezies wie Trichophyton mentagrophytes, Microsporon-Spezies wie Microsporon canis und audouinii.

Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfaßbaren mykotischen Spektrums dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

20

5

10

15

Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der Behandlung von Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10 000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1 000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10 000 g/ha, vorzugsweise zwischen 1 und 5 000 g/ha.

25

WO 02/08197

Die zum Schutz technischer Materialien verwendeten Mittel enthalten die Wirkstoffe im allgemeinen in einer Menge von 1 bis 95 %, bevorzugt von 10 bis 75 %.

Die Anwendungskonzentrationen der erfindungsgemäßen Wirkstoffe richten sich nach der Art und dem Vorkommen der zu bekämpfenden Mikroorganismen sowie nach der Zusammensetzung des zu schützenden Materials. Die optimale Einsatzmenge kann durch Testreihen ermittelt werden. Im allgemeinen liegen die Anwendungskonzentrationen im Bereich von 0,001 bis 5 Gew.-%, vorzugsweise von 0,05 bis 1,0 Gew.-% bezogen auf das zu schützende Material.

10

15

5

Die Wirksamkeit und das Wirkungsspektrum der erfindungsgemäß im Materialschutz zu verwendenden Wirkstoffe bzw. der daraus herstellbaren Mittel, Konzentrate oder ganz allgemein Formulierungen kann erhöht werden, wenn gegebenenfalls weitere antimikrobiell wirksame Verbindungen, Fungizide, Bakterizide, Herbizide, Insektizide oder andere Wirkstoffe zur Vergrößerung des Wirkungsspektrums oder Erzielung besonderer Effekte wie z.B. dem zusätzlichen Schutz vor Insekten zugesetzt werden. Diese Mischungen können ein breiteres Wirkungsspektrum besitzen als die erfindungsgemäßen Verbindungen.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den folgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele

Beispiel 1

5 Verfahren (a):

Eine Lösung von 0,59 g (0,0026 Mol) 2-(4-Methoximinomethyl-phenyl)-anilin in 25 mL Toluol wird bei Raumtemperatur mit 0,26 g (0,0026 Mol) Triethylamin versetzt. In dieses Gemisch lässt man bei Raumtemperatur unter Rühren eine Lösung von 0,6 g (0,0026 Mol) 2-Methyl-4-trifluormethylthiazol-5-carbonsäurechlorid in 5 mL Toluol einlaufen. Nach beendeter Zugabe wird das Reaktionsgemisch auf 50°C erwärmt und 2 h bei dieser Temperatur weiter gerührt. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch auf Raumtemperatur abgekühlt und mit Wasser versetzt. Die organische Phase wird abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet, filtriert und unter vermindertem Druck eingeengt. Der verbleibende Rückstand wird mit Cyclohexan: Essigsäureethylester = 3:1 als Laufmittel an Kieselgel chromatographiert. Nach dem Einengen des Eluates erhält man 0,81 g (74% der Theorie) an 2-Methyl-4-trifluormethylthiazol-5-carbonsäure-[2-(4-methoximinomethyl-phenyl)]-anilid als Festsubstanz vom Schmelzpunkt 122 bis 123°C.

10

15

Herstellung von Ausgangssubstanzen

5

10

15

20

25

Ein Gemisch aus 2,9 g (0,017 Mol) 2-Bromanilin, 0,68 g Tetrakis-(triphenyl-phosphin) palladium, 5,5 g (0,031 Mol) 4-Methoximinomethyl-phenyl-boronsäure und 40 mL 1,2-Dimethoxyethan wird bei Raumtemperatur mit einer Lösung von 8,2 g (0,077 Mol) Natriumcarbonat in 35 mL Wasser versetzt. Das Reaktionsgemisch wird anschließend auf Rückfluss-Temperatur gebracht und für 12 h gekocht. Zur Aufarbeitung wird auf Raumtemperatur abgekühlt und mit Diethylether extrahiert. Die organische Phase wird abgetrennt und mit Wasser versetzt. Die organische Phase wird erneut abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet und schließlich unter vermindertem Druck eingeengt. Der verbleibende Rückstand wird mit Cyclohexan: Essigsäureethylester = 3:1 als Laufmittel an Kieselgel chromatographiert. Nach dem Einengen des Eluates erhält man 3,8 g (98,8% der Theorie bezogen auf 2-Bromanilin) an 2-(4-Methoximinomethyl-phenyl)-anilin in Form eines Öles.

¹H-NMR-Spektrum (DMSO/TMS): $\delta = 3,90$ (3H) ppm.

Ein Gemisch aus 5,0 g (0,033 Mol) 4-Formylphenylboronsäure, 3,4 g (0,041 Mol) Methoxylamin-hydrochlorid, 3,4 g (0,041 Mol) Natriumacetat, 40 mL Methanol und 10 mL Wasser wird 12 h bei Raumtemperatur gerührt. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch in Wasser verrührt, der entstehende Niederschlag abgesaugt, mit Wasser gewaschen und bei 50°C im Vakuum getrocknet. Man erhält 5,56 g (93,1% der Theorie) an 4-Methoximinomethyl-phenyl-boronsäure als farblose Kristalle mit einem Schmelzpunkt von 199 bis 200°C.

Nach den zuvor beschriebenen Methoden werden auch die in der folgenden Tabelle aufgeführten Biphenylcarboxamide der Formel (I) hergestellt.

5 Tabelle 1

$$A \longrightarrow X_{m}$$

$$X_{m}$$

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|---|-------------------------|
| 2 | F ₃ C N N O CH ₃ | logP 3,42 ^{a)} |
| 3 | F ₃ C H ₃ CH ₃ | logP 4,65 ^{a)} |
| 4 | F ₃ C N S CH ₃ | Fp. 107-109°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|---|-------------------------|
| 5 | F ₃ C CH ₃ | logP 4,23 ^{a)} |
| 6 | F ₃ C N CH ₃ | Fp. 129-131°C |
| 7 | F ₃ C N O CH ₃ | Fp. 125-128°C |
| 8 | F ₃ C H ₃ H ₃ C N CH ₃ | Fp. 110-112°C |
| 9 | F ₃ C CH ₃ CH ₃ CH ₃ | Fp. 118-120°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|---|---------------------|
| 10 | F ₃ C N CH ₃ | Fp. 158-160°C |
| 11 | F ₂ HC N N O CH ₃ | Fp. 127-129°C |
| 12 | H ₃ C N N N O CH ₃ | Fp. 146°C |
| 13 | H ₃ C N N O CH ₃ | Fp. 137-139°C |
| 14 | H ₃ C H ₃ CH ₃ CH ₃ | Fp. 152-153°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|--------------------------|
| 15 | H ₃ C N O CH ₃ | |
| 16 | H ₃ C N CH ₃ | |
| 17 | H ₃ C N CI N CCH ₃ | logP 3,24 ^{a)} |
| 18 | F ₃ C N CH ₃ | Fp. 141-143°C |
| 19 | H ₃ C N CH ₃ | logP 5,10 ^a) |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--------------------------------------|-------------------------|
| 20 | N CI | Fp. 116-119°C |
| 21 | CH ₃ | Fp. 144-147°C |
| 22 | F ₃ C CH ₃ | logP 4,26 ^{a)} |
| 23 | F ₃ C CH ₃ | logP 4,26 ^{a)} |
| 24 | F ₃ C N O CH ₃ | Fp. 160-162°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|-------------------------|
| 25 | F ₃ C CH ₃ | Fp. 148-150°C |
| 26 | F ₃ C CH ₃ | Fp. 126-128°C |
| 27 | F ₃ C CH ₃ | Fp. 170-172°C |
| 28 | F ₃ C N N N N N N N N N N N N N N N N N N N | logP 3,86 ^{a)} |
| 29 | F ₃ C CH ₃ CH ₃ | Fp. 164-166°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|-------------------------|
| 30 | F ₃ C OH OH | logP 2,78 ^{a)} |
| 31 | F ₃ C CH ₃ | Fp. 89-91°C |
| 32 | F ₃ C N S N S N S N S N S N S N S N S N S N | logP 3,84 ^{a)} |
| 33 | н ₃ с-о | logP 4,12 ^{a)} |
| 34 | H ₃ C O CH ₃ | logP 4,73 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|-----------------------------------|-------------------------|
| 35 | H ₃ C OCH ₃ | logP 2,04 ^{a)} |
| 36 | CF ₃ N | logP 3,75 ^{a)} |
| 37 | CI S H | logP 4,08 ^{a)} |
| 38 | CI N N O H ₃ C | logP 3,59 ^{a)} |
| 39 | Br N | logP 3,61 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|-------------------------|
| 40 | CH3 ON ON | logP 3,56 ^{a)} |
| 41 | н₃с | logP 3,19 ^{a)} |
| | F ₃ C OH OH | |
| 42 | H ₃ C N N H ₃ C | logP 3,47 ^{a)} |
| 43 | H ₃ C N-O CH ₃ | logP 3,47 ^{a)} |
| 44 | CH3 CH3 | logP 3,76 ^{a)} |
| 45 | H ₃ C | logP 3,73 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|---|-------------------------|
| 46 | N-O, CH3 | logP 3,73 ^{a)} |
| 47 | H ₃ C N N O H ₃ C O | logP 3,86 ^{a)} |
| 48 | H ₃ C O N-O CH ₃ | logP 3,84 ^{a)} |
| 49 | F F H H H H H H H H H H H H H H H H H H | logP 3,54 ^{a)} |
| 50 | H ₃ C O CH ₃ | logP 3,36 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--------------------------------------|-------------------------|
| 51 | H ₃ C N S CH ₃ | logP 3,78 ^{a)} |
| 52 | H ₃ C N-O CH ₃ | logP 3,25 ^{a)} |
| 53 | S H ₃ C | logP 3,75 ^{a)} |
| 54 | H ₃ C | logP 3,20 ^{a)} |
| 55 | N-O CH ₃ | logP 3,20 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|-------------------------|
| 56 | Br N H ₃ C | logP 4,39 ^{a)} |
| 57 | Br O N-O CH ₃ | logP 4,39 ^{a)} |
| 58 | H ₃ C N N N N N N N CH ₃ | logP 3,37 ^{a)} |
| 59 | S CH ₃ N-O, CH ₃ | logP 3,64 ^{a)} |
| 60 | F CH ₃ | logP 3,26 ^{a)} |
| 61 | H ₃ C N-O CH ₃ | logP 3,26 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|---|-------------------------|
| 62 | F F F | logP 3,99 ^{a)} |
| 63 | F F N-O CH ₃ | logP 4,02 ^{a)} |
| 64 | H ₃ C | logP 3,94 ^{a)} |
| 65 | H ₃ C N-O CH ₃ | logP 3,97 ^{a)} |
| 66 | H ₃ C CH ₃ O H ₃ C H ₃ C H ₃ C | logP 3,82 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|-------------------------|
| 67 | CI S H ₃ C | logP 3,75 ^{a)} |
| 68 | CI S N-O CH ₃ | logP 3,75 ^{a)} |
| 69 | H ₃ C | logP 4,40ª) |
| 70 | H ₃ C N-O CH ₃ | logP 4,45 ^{a)} |
| 71 | Br N N N N N N N N N N N N N N N N N N N | logP 3,78 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|-------------------------|
| 72 | Br N-O, CH, | logP 3,80 ^{a)} |
| 73 | H ₃ C CH ₃ | logP 4,00 ^{a)} |
| 74 | H ₃ C S F CI N-O CH ₃ | logP 3,95 ^{a)} |
| 75 | H ₃ C N C _C H ₃ | Fp. 129-131°C |
| 76 | F CH ₃ CH ₃ | Fp. 157-158°C |
| 77 | F CH ₃ H ₃ C N CH ₃ | logP 4,77 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|---------------------|
| 78 | F N OH | |
| 79 | H ₃ C N N CH ₃ CH ₃ | Fp. 107-109°C |
| 80 | H ₃ C CH ₃ CH ₃ | Fp. 168-171°C |
| 81 | F CH ₃ CH ₃ | Fp. 148-150°C |
| 82 | H ₃ C N O CH ₃ | Fp. 118°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|---------------------|
| 83 | H ₃ C O-N CH ₃ | Fp. 119-121°C |
| 84 | F CH ₃ | Fp. 160-162°C |
| 85 | CH ₃ | |
| 86 | H ₃ C CH ₃ CH ₃ CH ₃ CH ₃ | Fp. 115-117°C |
| 87 | H ₃ C N CI N CH ₃ | Fp. 98°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--------------------------------------|---------------------|
| 88 | H ₃ C—CH ₃ | Fp. 108-110°C |
| 89 | H ₃ C N CH ₃ | Fp. 119-121°C |
| 90 | H ₃ C N H CH ₃ | Fp. 80-82°C |
| 91 | CH ₃ | Fp. 68-70°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|---|-------------------------|
| 92 | H ₃ C O O O O O O O O O O O O O O O O O O O | Fp. 55-57°C |
| 93 | H ₃ C N O CH ₃ | Fp. 110-112°C |
| | H _s C S | |
| 94 | CI NO CH ₃ | |
| | H ₁ C ^O | |
| 95 | CH ₃ | logP 3,68 ^{a)} |
| 96 | H ₃ C CI N N H ₃ C | logP 3,72 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|----------------------------------|-------------------------|
| 97 | CH ₃ | logP 3,76 ^{a)} |
| 98 | H ₃ C O-N CI N N | logP 3,81 ^{a)} |
| 99 | CH ₃ | logP 4,67 ^{a)} |
| 100 | H ₃ C CI S CI | logP 4,72 ^{a)} |
| 101 | CH ₃ NO ₂ | logP 3,26 ^{a)} |
| 102 | H ₃ C NO ₂ | logP 3,26 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|-------------------------|
| 103 | H ₃ C CI N CI | logP 3,87 ^{a)} |
| 104 | H ₃ C N O CH ₃ | Fp. 94-97°C |
| 105 | H ₃ C N N CI | Fp. 103-105°C |
| 106 | H ₃ C CH ₃ | Fp. 108-109°C |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|---|--------------------------|
| 107 | H ₃ C CH ₃ | Fp. 84-86°C |
| 108 | ĊH ₃ | logP 3,10 ^a) |
| 109 | H ₃ C O-N | |
| 110 | CH ₃ N H ₃ C S | logP 3,58 ^{a)} |
| 111 | H ₃ C O-N H ₃ C S | logP 3,59ª) |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--------------------------|-------------------------|
| 112 | H ₃ C-N | logP 3,21 ^{a)} |
| | | |
| | H ₃ C-O N= F | |
| 113 | | logP 2,43 ^{a)} |
| | N OH | |
| | H ₃ C O | |
| 114 | F | logP 3,00 ^{a)} |
| | H ₃ C-N | |
| | H ₃ C-O N== F | |
| 115 | | Fp. 157-159°C |
| | ĊH ₃ | |
| | н,с′ сн, | |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|---|-------------------------|
| 116 | H ₃ C CH ₃ | Fp. 70-72°C |
| 117 | H ₃ C H ₃ C CH ₃ CH ₃ | Fp. 75°C |
| 118 | H ₃ C H ₃ C H ₃ C | logP 4.22 ^{a)} |

| BspNr. | | Physikal. Konstante |
|--------|--|---------------------|
| 119 | H ₃ C | Fp. 90-92°C |
| 120 | H ₃ C H ₃ C H ₃ C | Fp. 141-143°C |
| 121 | CI S CF3 | Fp. 82-84°C |

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 92 -

Die Bestimmung der in Tabelle 1 angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

- 5 (a) Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich: 0,1 % wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit a) markiert.
- (b) Eluenten für die Bestimmung im neutralen Bereich: 0,01-molare wässrige Phosphatpuffer-Lösung, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit b) markiert.

Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

15

Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 93 -

Anwendungsbeispiele

Beispiel A

5 Podosphaera-Test (Apfel) / protektiv

Lösungsmittel:

24,5 Gewichtsteile Aceton

24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator:

1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykolether

10

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

2 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension des Apfelmehltauerregers Podosphaera leucotricha inokuliert. Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % aufgestellt.

20

- 10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.
- 25 Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle A: Podosphaera-Test (Apfel) / protektiv

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | % Wir- kungsgrad |
|-----------|--|---|---------------------|
| (I-1) | F F N N O CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-3) | F ₃ C N N S H CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-4) | F ₃ C N S H CH ₃ | 100 | 95 |
| (I-5) | F ₃ C N H CH ₃ CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-10) | F—F CH ₃ | 100 | 88 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge | % Wir- |
|-----------|---|-----------------|------------|
| WIRSTOIL | | an Wirkstoff in | kungsgrad |
| | | g/ha | iiuigogiuo |
| (I-11) | F ₂ HC NN CH ₃ | 100 | 93 |
| (I-20) | N O CH ₃ | 100 | 100 |
| | CI | | |
| (I-22) | F ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-23) | F ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-24) | F ₃ C H ₃ CH ₃ | 100 | 75 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge | % Wir- |
|-----------|--|-------------------------|-----------|
| | | an Wirkstoff in g/ha | kungsgrad |
| (I-26) | CH ₃ | 100 | 100 |
| | F ₃ C H ₃ | | |
| (I-28) | F ₃ C N N N N N N N N N N N N N N N N N N N | 100 | 99 |
| (I-41) | F ₃ C OH OH | 100 | 98 |
| (I-47) | H ₃ C N N H ₃ C | 100 | 100 |
| (1-49) | F F F H H H H H H H H H H H H H H H H H | 100 | 100 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge | % Wir- |
|-----------|--|-----------------|-----------|
| | | an Wirkstoff in | kungsgrad |
| | | g/ha | Kungograu |
| (I-50) | F F F O CH ₃ | 100 | 93 |
| (I-51) | H ₃ C H ₃ | 100 | 100 |
| (1-52) | H ₃ C N-O _{CH₃} | 100 | 77 |

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 98 -

Beispiel B

Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

5 Lösungsmittel: 24,

24,5 Gewichtsteile Aceton

24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator:

1,0 Gewichtsteile Alk yl-Aryl-Polyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension von Sphaerotheca fuliginea inokuliert. Die Pflanzen werden dann bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % im Gewächshaus aufgestellt.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wir20 kungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von
100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

10

15

Tabelle B: Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

| Wirkstoff | | Aufwandmenge | % Wir- |
|-----------|------------------------------------|-----------------|-----------|
| | | an Wirkstoff in | kungsgrad |
| | | g/ha | |
| (I-1) | F CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-3) | O~CH ₃ | 100 | 100 |
| | F ₃ C N CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-4) | F,Q | 100 | 93 |
| | CH ₃ | | |
| (I-5) | F ₃ C | 100 | 100 |
| | ĊH ₃ | | |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | % Wir- kungsgrad |
|-----------|---|---|---------------------|
| (I-10) | F-F CH, | 100 | 88 |
| (I-11) | F ₂ HC N N N CH ₃ | 100 | 95 |
| (I-20) | CI NO-CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-22) | F ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-23) | F ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | % Wir- kungsgrad |
|-----------|--|---|---------------------|
| (I-24) | F ₃ C N O CH ₃ | 100 | 92 |
| (I-26) | F ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-28) | F ₃ C N N O H ₃ C | 100 | 100 |
| (I-41) | F ₃ C OH OH | 100 | 72 |
| (I-47) | H ₃ C N N H ₃ C | 100 | 100 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | kungsgrad |
|-----------|--------------------------------------|---|-----------|
| (I-49) | F F N H ₃ C | 100 | 100 |
| (I-50) | F F N N O CH ₃ | 100 | 97 |
| (I-51) | H ₃ C H ₃ | 100 | 100 |
| (I-52) | H ₃ C N-O CH ₃ | 100 | 97 |

Beispiel C

Venturia - Test (Apfel) / protektiv

5 Lösungsmittel:

24,5 Gewichtsteile Aceton

24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator:

15

20

25

1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers Venturia inaequalis inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubations-kabine.

Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 21°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 90 % aufgestellt.

12 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle C: Venturia - Test (Apfel) / protektiv

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | % Wir- kungsgrad |
|-----------|--|---|---------------------|
| (I-1) | F F O N O CH3 | 100 | 100 |
| (I-3) | F ₃ C N S CH ₃ CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-4) | F ₃ C N N S N O CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-5) | F ₃ C N S CH ₃ CH ₃ | 100 | 100 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | % Wir- kungsgrad |
|-----------|---------------------------------------|---|---------------------|
| (I-10) | F-F NO-CH ₃ | 100 | 88 |
| (I-11) | F ₂ HC N N CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-20) | CI H | 100 | 100 |
| (I-22) | F ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-23) | F ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | % Wir- kungsgrad |
|-----------|---------------------------------------|---|---------------------|
| (I-24) | F ₃ C N O CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-26) | F ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-28) | F ₃ C N H ₃ C | 100 | 100 |
| (I-41) | F ₃ C N OH | 100 | 100 |
| (I-47) | H ₃ C O H ₃ C O | 100 | 100 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge | % Wir- |
|-----------|--|-----------------|-----------|
| | | an Wirkstoff in | kungsgrad |
| | | g/ha | |
| (1-49) | F F F H | 100 | 100 |
| (I-50) | H ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-51) | H ₃ C CH ₃ | 100 | 100 |
| (I-52) | H ₃ C N-O _{CH₃} | 100 | 100 |

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 108 -

Beispiel D

Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

5 Lösungsmittel:

10

15

20

25

25 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid

Emulgator:

0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von Puccinia recondita besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle D: Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

| Wirkstoff | | Aufwandmenge | % Wir- |
|-----------|------------------------------------|-----------------|-----------|
| | | an Wirkstoff in | kungsgrad |
| | | , g/ha | |
| (I-1) | F F N N N O CH3 | 250 | 100 |
| (I-3) | F ₃ C N CH ₃ | 250 | 100 |
| (I-10) | F ₃ C N CH ₃ | 250 | 100 |
| (I-20) | CI NOCH3 | 250 | 100 |

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | % Wir- kungsgrad |
|-----------|---------------------------------|---|---------------------|
| (1-49) | F F CI | 250 | 100 |
| (I-51) | H ₃ C H ₃ | 250 | 100 |

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 111 -

Beispiel E

10

15

20

Alternaria-Test (Tomate) / protektiv

5 Lösungsmittel: 49 Gewichtsteile N,N-Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Tomatenpflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer Sporensuspension von Alternaria solani inokuliert und stehen dann 24 h bei 100 % rel. Feuchte und 20°C. Anschließend stehen die Pflanzen bei 96 % rel. Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 20°C.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle E: Alternaria-Test (Tomate) / protektiv

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha | % Wir- kungsgrad |
|-----------|-------------------|---|---------------------|
| (I-1) | FF N N S O-CH3 | 750 | 100 |
| (I-2) | F CH ₃ | 750 | 100 |
| (I-6) | F CH ₃ | 750 | 90 |
| (I-11) | F O H | 750 | 95 |

Beispiel F

Hemmtest an Riesenkolonien von Basidiomyceten

Aus Kolonien von Gloeophyllum trabeum, Coniophora puteana, Poria placenta, Lentinus tigrinus und Coriolus versicolor wurden Myzelstücke ausgestochen und auf einem Malzextrakt-Pepton-haltigen Agarnährboden bei 26°C inkubiert Die Hemmung des Hyphenwachstums auf wirkstoffhaltigen Nährböden wurde mit dem Längenwachstum auf Nährboden ohne Wirkstoffzusatz verglichen und als prozentuale Hemmung bonitiert.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele gute Wirksamkeit:

Tabelle F: Hemmtest an Riesenkolonien von Basidiomyceten

| Wirkstoff | | Aufwandmenge an Wirkstoff in ppm | % Wirkungsgrad |
|-----------|--------------------------------------|-------------------------------------|----------------|
| (I-1) | F F CH ₃ | 6 | 100 |
| (I-10) | F ₃ C N N CH ₃ | 6 | 100 |
| (I-11) | F CH ₃ | 6 | 100 |
| (I-12) | H ₃ C CH ₃ | 6 | 100 |

Patentansprüche

1. Biphenylcarboxamide der Formel (1)

$$A \longrightarrow X_{m}$$

$$X_{m}$$

$$X_{n}$$

5

in welcher

R für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl oder für C₁-C₆-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

10

Z für Wasserstoff, C_1 - C_6 -Alkyl oder für C_1 - C_6 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

X und Y unabhängig voneinander für Halogen, Nitro, Cyano, Hydroxy,

15

Carboxyl, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₆-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₈-Alkylthio, C₁-C₆-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₂-C₈-Alkenyloxy, C₂-C₈-Halogenalkenyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₈-Alkinyloxy, C₃-C₈-Halogenalkinyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₈-Cycloalkyl, C₁-C₈-Alkoxycarbonyl, C₁-C₈-Alkylsulfinyl, C₁-C₈-Alkylsulfinyl, C₁-C₈-Halogenalkylsulfinyl

20

m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,

Halogenatomen oder C₁-C₆-Alkoximino-C₁-C₆-alkyl stehen,

mit 1 bis 5 Halogenatomen, C1-C8-Halogenalkylsulfonyl mit 1 bis 5

n für ganze Zahlen von 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

5 und

A für einen Rest der Formel

$$R^1$$
 N
 R^2
 R^2

steht, worin

10

α) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C₁-C₄-alkyl steht und

15

R² für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkylthio steht und

20

R³ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit

1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C₁-C₄-alkyl, C₂-C₆Alkenyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄alkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5

Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄Halogenalkoxy-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen
oder Phenyl steht,

| 5 | β) | R ¹ | für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C ₂ -C ₄ -Alkyl, C ₁ -C ₄ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C ₃ -C ₆ -Cycloalkyl, C ₁ -C ₄ -Alkoxy, C ₁ -C ₄ -Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C ₁ -C ₄ -Alkylthio, C ₁ -C ₄ -Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C ₁ -C ₄ -alkyl steht und |
|----|------|----------------|--|
| 10 | | R ² | für Fluor steht und |
| | | R ³ | für Wasserstoff, C ₁ -C ₄ -Alkyl, C ₁ -C ₄ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C ₁ -C ₄ -alkyl, C ₂ -C ₆ -Alkenyl, C ₃ -C ₆ -Cycloalkyl, C ₁ -C ₄ -Alkylthio-C ₁ -C ₄ - |
| 15 | | | alkyl, C ₁ -C ₄ -Halogenalkylthio-C ₁ -C ₄ -alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C ₁ -C ₄ -Alkoxy-C ₁ -C ₄ -alkyl, C ₁ -C ₄ -Halogenalkoxy-C ₁ -C ₄ -alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht, |
| 20 | oder | | |
| | γ) | \mathbb{R}^1 | für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C ₁ -C ₄ -Alkyl, C ₁ -C ₄ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C ₃ -C ₆ -Cycloalkyl, C ₁ -C ₄ -Alkoxy, C ₁ -C ₄ -Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C ₁ -C ₄ -Alkylthio, C ₁ -C ₄ -Halogen- |
| 25 | | | alkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C ₁ -C ₄ -alkyl steht und |
| | | R ² | für Fluor steht und |
| 30 | | R³ | für Wasserstoff, C ₂ -C ₄ -Alkyl, C ₁ -C ₄ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C ₁ -C ₄ -alkyl, C ₂ -C ₆ - |

WO 02/08197

- 118 -

Alkenyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy-C₁-C₄-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

5

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

10

R⁴ und R⁵ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

15

R⁶ für Halogen, Cyano oder C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

20

A für einen Rest der Formel

25

R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

R⁹ für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder für Halogen steht,

oder

5

A für einen Rest der Formel

10

R¹⁰ für Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Cyano, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen oder für C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

15

A für einen Rest der Formel

20

R¹¹ für Halogen, Hydroxy, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, oder für C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

25

R¹² für Wasserstoff, Halogen, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogen

- 120 -

atomen, C_1 - C_4 -Alkylsulfinyl oder für C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl steht,

oder

5

10

15

25

A für einen Rest der Formel

$$R^{14}$$
 steht, worin

 R^{13} für C_1 - C_4 -Alkyl oder für C_1 - C_4 -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R¹⁴ für C₁-C₄-Alkyl steht,

X1 für ein Schwefelatom, für SO, SO2 oder CH2 steht,

p für 0, 1 oder 2 steht,

oder

20 A für einen Rest der Formel

R¹⁵ für C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

steht, worin

R¹⁶ für C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

10

5

R¹⁷ für Halogen, Cyano, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

15

R¹⁸ für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20

R¹⁹ für Wasserstoff, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, Hydroxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, Di(C₁-C₄-alkyl)aminosulfonyl, C₁-C₆-Alkylcarbonyl oder für gegebenenfalls substituiertes Phenylsulfonyl oder Benzoyl steht,

5

10

15

20

A für einen Rest der Formel

R²⁰ und R²¹ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen,
Amino, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5
Halogenatomen stehen und

R²² für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

R²³ und R²⁴ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Amino, Nitro, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

R²⁵ für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

R²⁶ für Wasserstoff, Halogen, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Cyano, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogen-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R²⁷ für Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

15

5

10

R²⁸ für Wasserstoff, Halogen, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Cyano, C₁-C₄-Alkyl oder für C₁-C₄-Halogen-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

20

R²⁹ für Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

steht, worin

R³⁰ für Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

10

5

 R^{31} für Wasserstoff oder $C_1\text{-}C_4\text{-}Alkyl$ steht und

R³² für Halogen oder C₁-C₄-Alkyl steht,

15

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

20

R³³ für C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

10

A für einen Rest der Formel

steht, worin

5 R³⁴ für Wasserstoff, Halogen oder für C₁-C₄-Alkyl steht.

- 2. Biphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher
 - R für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,
 - Z für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,
- X und Y unabhängig voneinander für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano,
 Hydroxy, Carboxyl, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5
 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₂-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder
 Bromatomen, C₂-C₆-Alkenyloxy, C₂-C₆-Halogenalkenyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₆-Alkinyloxy, C₃-C₆-Halogenalkinyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₇-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxycarbonyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Halogenalkylsulfinyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₆-Halogenalkylsulfonyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder für C₁-C₄-Alkoximino-C₁-C₄-alkyl stehen,
 - m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,

WO 02/08197

n für ganze Zahlen von 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

und

5

für einen Rest der Formel Α

$$\mathbb{R}^1$$
 \mathbb{N}
 \mathbb{R}^2
 \mathbb{R}^3

steht, worin

10

 \mathbb{R}^1 für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, α) Ethyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

15

 \mathbb{R}^2 für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio steht und

20

 \mathbb{R}^3 für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C1-C2-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

25

oder

 R^1 β)

für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Ethyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlorund/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

5

R² für Fluor steht und

10

R³ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

oder

15

γ) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

20

R² für Fluor steht und

25

R³ für Wasserstoff, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

30

5

R⁴ und R⁵ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

10

R⁶ für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder
 Bromatomen steht,

oder

15

A für einen Rest der Formel

20

R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R⁹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht,

oder

R¹⁰ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlorund/oder Bromatomen, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder für C₁-C₂-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

15

5

10

R¹¹ für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, oder für C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

20

R¹² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, für C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₂-Alkylsulfinyl oder C₁-C₂-Alkylsulfonyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

5

R¹³ für Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

10

R¹⁴ für Methyl oder Ethyl steht,

 $\mathbf{X}^{\mathbf{l}}$

für ein Schwefelatom, für SO, SO2 oder CH2 steht und

p

für 0, 1 oder 2 steht,

15

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

20

R¹⁵ für Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

steht, worin

R¹⁶ für Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

10

5

R¹⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, Isopropyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

15

R¹⁸ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

20

R¹⁹ Wasserstoff, Methyl, Ethyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C₁-C₂-Alkoxy-C₁-C₂-alkyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Methylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

25

5

10

15

20

25

A für einen Rest der Formel

R²⁰ und R²¹ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit

1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R²² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

R²³ und R²⁴ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Nitro, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R²⁵ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

5

R²⁶ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Cyano, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

10

R²⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

15

A für einen Rest der Formel

20

R²⁸ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Di-(C₁-C₄-alkyl)amino, Cyano, Methyl, Ethyl oder für C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R²⁹ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

25

steht, worin

5 R³⁰ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

10 A für einen Rest der Formel

 R^{31} für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

15 R³² für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht,

oder

20

A für einen Rest der Formel

R³³ für Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlorund/oder Bromatomen steht, oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

5

25

R³⁴ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

- 3. Biphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher
- 10 R für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl steht,
 - Z für Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl steht,
- 15 Hydroxy, Carboxyl, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, i-Butyl, tert.-Butyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Allyloxy, Propargyloxy, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methoximinomethyl, Ethoximinomethyl, Methoximinoethyl oder Ethoximinoethyl stehen,
 - m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,
 - n für die Zahlen 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

und

A für einen Rest der Formel

$$R^1$$
 N
 R^3

steht, worin

5

α) R¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und

R² für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio steht und

15

10

R³ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

20

β) R¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Ethyl, Isopropyl,
Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy,
Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio,
Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und

25

R² für Fluor steht und

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 137 -

R³ für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

5

10

15

γ) R¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl,
Isopropyl, Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl,
Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy,
Ethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio,
Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und

R² für Fluor steht und

R³ für Wasserstoff, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

20

R⁴ und R⁵ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

25

R⁶ für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluorchlormethoxy oder Trichlormethoxy steht, oder

A für einen Rest der Formel

5

R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor,
Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl,
Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

10

R⁹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

15

20

R¹⁰ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluor-chlormethyl, Trichlormethyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy, Trichlormethoxy, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio oder Trichlormethylthio steht,

25

5

10

15

20

25

A für einen Rest der Formel

R¹¹ für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy oder Trichlormethoxy steht und

R¹² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Trifluor-methyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trichlormethoxy, Methylsulfinyl oder Methylsulfonyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

$$R^{14}$$
 steht, worin

R¹³ für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht und

R¹⁴ für Methyl oder Ethyl steht,

X¹ für ein Schwefelatom, für SO, SO₂ oder CH₂ steht und

p für 0, 1 oder 2 steht,

5

oder

A für einen Rest der Formel

steht worin

10

R¹⁵ für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

oder

15

A für einen Rest der Formel

20

R¹⁶ für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

steht, worin

R¹⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, Isopropyl,
Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder
Trichlormethyl steht,

R¹⁸ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht und

R¹⁹ Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Hydroxymethyl oder Hydroxyethyl steht,

oder

15

25

10

5

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R²⁰ und R²¹ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor,
20
Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl,
Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

R²² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluor-methyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

5

R²³ und R²⁴ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl stehen und

10

R²⁵ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluor-methyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

15

oder

A für einen Rest der Formel

20

R²⁶ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methylamino, Dimethylamino, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht und

25

R²⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

5

R²⁸ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methylamino, Dimethylamino, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht und

10

R²⁹ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

15

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

20

R³⁰ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

5

15

20

A für einen Rest der Formel

R³¹ für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

R³² für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht,

oder

10 A für einen Rest der Formel

R³³ für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

R³⁴ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

- 4. Verfahren zur Herstellung von Biphenylcarboxamiden der Formel (I) gemäß
 Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man
 - a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

5

in welcher

A die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat und

10

G für Halogen, Hydroxy oder C₁-C₆-Alkoxy steht,

mit Anilin-Derivaten der Formel (III)

15

in welcher

R, Z, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

b) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

5

in welcher

A, X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

10 mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

$$G^1O_BOG^2$$

$$V_n = N_O Z$$

$$(V)$$

in welcher

15

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

25

c) Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)

$$A \longrightarrow X_{m}$$

$$G^{1}O \longrightarrow G^{2}$$

$$(VI)$$

5 A, X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

10 mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

in welcher

15 R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

20 oder

d) Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII)

A, R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit Alkoxaminen der Formel (IX)

in welcher Z die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

15 oder

5

10

e) Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a)

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & & \\$$

20 in welcher

A, R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

5

mit Verbindungen der Formel (X)

$$Z^{1}$$
E (X)

in welcher

10

- Z¹ für C₁-C₆-Alkyl steht und
- E für Chlor, Brom, Iod, Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl steht,

15

oder

Z1 und E zusammen für (Di-C1-C6-alkyl)sulfat stehen,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

f) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

25

$$A \xrightarrow{Br} X_m$$
 (IV)

in welcher

A, X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

5 in welcher

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

in Gegenwart eines Palladium- oder Platin-Katalysators und in Gegenwart von 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

5. Anilin-Derivate der Formel (III)

15

10

in welcher

R, Z, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

20 6. Verfahren zur Herstellung von Anilin-Derivaten der Formel (III) gemäß Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass man

g) 2-Halogenanilin-Derivate der allgemeinen Formel (XI)

in welcher

5

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

10

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

$$G^{1}O_{B}OG^{2}$$

$$V_{n} R V_{O} Z \qquad (V)$$

in welcher

15

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt

oder

h) Anilinboronsäuren der Formel (XII)

5

in welcher

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

10

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

15

in welcher

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

7. Boronsäure-Derivate der Formel (V)

$$G^{1}O_{B}OG^{2}$$

$$V_{n}$$

$$R$$

$$V$$

$$V$$

$$V$$

in welcher

5

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen.

10

- Verfahren zur Herstellung von Boronsäure-Derivaten der Formel (V) gemäß
 Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass man
 - i) Phenylboronsäuren der Formel (XIII)

15

$$G^{1}O$$
 $G^{2}O$
 $(XIII)$

in welcher

R, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

20

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

- 154 -

mit Alkoxaminen der Formel (IX)

in welcher

5

10

20

Z die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdtinnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

9. Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)

$$A = A - X_m$$

$$G^1O - B - OG^2$$
(VI)

in welcher

A, X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

G¹ und G² jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen.

- Verfahren zur Herstellung von Carboxamid-Boronsäure-Derivaten der Formel
 (VI) gemäß Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass man
- j) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



A und G die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

5

mit Anilinboronsäuren der Formel (XII)

in welcher

10

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

15

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

20

11. Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII)

A, R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

- 12. Verfahren zur Herstellung von Biphenylacyl-Derivaten der Formel (VIII) gemäß Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass man
 - k) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

10

5

in welcher

A und G die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

15

mit 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel (XIV)

R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umsetzt.

13. 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate der Formel (XIV)

10

5

$$H_2N$$
 X_m
 X_m
 X_m
 X_m
 X_m
 X_m
 X_m
 X_m
 X_m
 Y_m
 Y_m

in welcher

R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

15

- Verfahren zur Herstellung von 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel
 (XIV) gemäß Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass man
 - 1) Anilin-Derivate der Formel (XI)

20

in welcher

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

5

mit Phenylboronsäure-Derivaten der Formel (XIII)

$$G^{1}O$$
 $G^{2}O$
 Y_{n}
(XIII)

in welcher

10

R, Y und n die Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 G^1 und G^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

15

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umsetzt.

- 20 15. Mittel zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Biphenylcarboxamid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.
- Verwendung von Biphenylcarboxamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1
 zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen.

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 159 -

- 17. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Biphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.
- 5 18. Verfahren zur Herstellung von Mitteln zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Biphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.

INJERNATIONAL SEARCH REPORT

PCT /EP 01/07981

| IPC 7 | FICATION OF SUBJECT MATTER C07D231/44 C07D277/56 C07D207/ C07D307/68 C07D333/38 C07D327/ C07C233/65 C07C211/45 C07C223/ International Patent Classification (IPC) or to both national classification | 06 CO7D263/34 06 A01N43/00 | C07D307/30 C07C251/48 |
|--|--|--|--|
| | cumentation searched (classification system followed by classificati | on symbols) | |
| | ion searched other than minimum documentation to the extent that s | | |
| EPO-In | ata base consulted during the international search (name of data ba ternal, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Dat | • | arms used) |
| | ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | |
| Category ° | Citation of document, with indication, where appropriate, of the rel | evant passages | Relevant to claim No. |
| Υ | WO 00 14071 A (MAULER MACHNIK AST; KUGLER MARTIN (DE); STENZEL KLAUBAY) 16 March 2000 (2000-03-16) cited in the application page 7 -page 8; claims; examples | 1~18 | |
| Y | WO 00 09482 A (NOVARTIS ERFIND VE GMBH ;EBERLE MARTIN (CH); NOVARTI (CH)) 24 February 2000 (2000-02-2 claims; examples | 1-18 | |
| A | WO 99 09013 A (BASF AG ;EICKEN KAL LORENZ GISELA (DE); RACK MICHAEL 25 February 1999 (1999-02-25) cited in the application claims; examples | | 1-18 |
| Funt | ner documents are listed in the continuation of box C. | X Patent family members | are listed in annex. |
| 'A' docume consider illing de 'L' docume which citation 'O' docume other i 'P' docume later ti | tegories of cited documents: ant defining the general state of the art which is not lered to be of particular relevance document but published on or after the international late and which may throw doubts on priority claim(s) or is cited to establish the publication date of another no or other special reason (as specified) and referring to an oral disclosure, use, exhibition or means and published prior to the international filing date but the priority date claimed actual completion of the international search | cited to understand the prin invention "X" document of particular relevicannot be considered nove involve an inventive step with document of particular relevicannot be considered to involve an inventive step with the considered with the c | onflict with the application but ciple or theory underlying the ance; the claimed invention for cannot be considered to hen the document is taken alone ance; the claimed invention volve an inventive step when the one or more other such docu-eing obvious to a person skilled me patent family |
| 5 | November 2001 | 13/11/2001 | |
| Name and r | nalling address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk | Authorized officer | |
| | Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fex: (+31-70) 340-3016 | Menegaki, F | |

iformation on patent family members

PCT/EP 01/07981

| Patent document cited in search report | | Publication date | | Patent family member(s) | Publication date |
|---|----|---------------------|----|----------------------------|---------------------|
| WO 0014071 | .A | 16-03-2000 | DE | 19840322 A1 | 09-03-2000 |
| | | | AU | 5970399 A | 27-03-2000 |
| | | | BR | 9913383 A | 22-05-2001 |
| | | | WO | 0014071 A2 | 16-03-2000 |
| WO 0009482 | Α | 24-02-2000 | AU | 5513899 A | 06-03-2000 |
| | | | BR | 9912962 A | 08-05-2001 |
| | | | CN | 1311774 T | 05-09-2001 |
| | | | WO | 0009482 A1 | 24-02-2000 |
| | | | EP | 1105375 A1 | 13-06-2001 |
| WO 9909013 | Α | 25-02-1999 | DE | 19735224 A1 | 18-02-1999 |
| | | | ΑU | 9069098 A | 08-03-1999 |
| | | | BR | 9811168 A | 25-07-2000 |
| | | | CN | 1267285 T | 20-09-2000 |
| | | | WO | 9909013 Al | 25-02-1999 |
| | | | EP | 1003725 A1 | 31-05-2000 |
| | | | HU | 0004463 A2 | 28-05-2001 |
| | | | JP | 2001515068 T | 18-09-2001 |
| | | | PL | 338735 A1 | 20-11-2000 |
| | | | US | 6147104 A | 14-11-2000 |

| Nach der In | FIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES C07D231/44 C07D277/56 C07D207/3 C07D307/68 C07D333/38 C07D327/0 C07C233/65 C07C211/45 C07C223/0 ternationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klass RCHIERTE GEBIETE ter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbol | 06 C07D263/34 06 A01N43/00 silikation und der IPK | C07D307/30 C07C251/48 |
|--|--|---|--|
| IPK 7 | CO7D CO7C | · , | |
| Recherchler | te aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, sow | veit diese unter die recherchiert | en Gebiete fallen |
| EPO-In | or Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Na ternal, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Dat | | erwendete Suchbegriffe) |
| | SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN | | |
| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, sowelt erforderlich unter Angabe | der in Betracht kommenden Te | elle Betr. Anspruch Nr. |
| Υ | WO 00 14071 A (MAULER MACHNIK AST; KUGLER MARTIN (DE); STENZEL KLAUBAY) 16. März 2000 (2000-03-16) in der Anmeldung erwähnt Seite 7 -Seite 8; Ansprüche; Beis | S (DE); | 1-18 |
| Y | WO 00 09482 A (NOVARTIS ERFIND VE GMBH ;EBERLE MARTIN (CH); NOVARTI (CH)) 24. Februar 2000 (2000-02-2 Ansprüche; Beispiele | S AG | 1-18 |
| Α | WO 99 09013 A (BASF AG ;EICKEN KA LORENZ GISELA (DE); RACK MICHAEL 25. Februar 1999 (1999-02-25) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiele | | 1-18 |
| | ere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu ehmen | X Siehe Anhang Patentfe | amilie |
| * Besonders *A* Veröffe aber n *E* älteres Anme *L* Veröffe schelr ander soll oc ausge *O* Veröffe eine E *P* Veröffe dem b | e Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen ntlichung, die den algemeinen Stand der Technik definiert, sicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen idedatum veröffentlicht worden ist ntlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- ein zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer ein im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden der die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie führt) sittlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, senutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht intlichung, die vor dem internationalen Anmeidedatum, aber nach eeanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist | oder dem Prforitätsdatum v. Anmeldung nicht kollidiert, i Erfindung zugrundellegendt Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besond kann allein aufgrund dieser erfinderischer Tätigkeit ben "Y" Veröffentlichung von besond kann nicht als auf erfinderis werden, wenn die Veröffentlichungen dieser k diese Verbindung für einen "&" Veröffentlichung, die Mitglier "&" Veröffentlichung, die Mitglier | derer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung icher Tätigkeit berühend betrachtet liichung mil einer oder mehreren anderen Kategorie in Verbindung gebracht wird und Fachmann nahellegend ist d derselben Patentfamilie ist |
| | Abschlusses der internationalen Recherche November 2001 | Absendedatum des interna: | ilonalen Recherchenberichts |
| | Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2 | Bevollmächtigter Bedienste | ster |
| | NL - 2280 HV Rijswijk Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo n!, Fax: (+31-70) 340-3016 | Menegaki, F | |

PCT/EP 01/07981

| | echerchenbericht rtes Patentdokum | ent | Datum der Veröffentlichung | | Mitglied(er) der Patentiamilie | Datum der Veröffentlichung |
|----|--------------------------------------|-----|-------------------------------|----|-----------------------------------|-------------------------------|
| WO | 0014071 | Α | 16-03-2000 | DE | 19840322 A1 | 09-03-2000 |
| | | | | ΑU | 5970399 A | 27-03-2000 |
| | | | | BR | 9913383 A | 22-05-2001 |
| | | | | WO | 0014071 A2 | 16-03-2000 |
| WO | 0009482 | A | 24-02-2000 | AU | 5513899 A | 06-03-2000 |
| | | | | BR | 9912962 A | 08-05-2001 |
| | | | | CN | 1311774 T | 05-09-2001 |
| | | | | WO | 0009482 A1 | 24-02-2000 |
| | | | | EP | 1105375 A1 | 13-06-2001 |
| WO | 9909013 | A | 25-02-1999 | DE | 19735224 A1 | 18-02-1999 |
| | | | | AU | 9069098 A | 08-03-1999 |
| | | | | BR | 9811168 A | 25-07-2000 |
| | | • | | CN | 1267285 T | 20-09-2000 |
| | | | | WO | 9909013 A1 | 25-02-1999 |
| | | | | ΕP | 1003725 A1 | 31-05-2000 |
| | | | | ΗU | 0004463 A2 | 28-05-2001 |
| | | | | JP | 2001515068 T | 18-09-2001 |
| | | | | PL | 338735 A1 | 20-11-2000 |
| | | | | US | 6147104 A | 14-11-2000 |